

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第 12 条、法施行規則第 56 条)
〔PCT36 条及び PCT 規則 70〕

REC'D 06 OCT 2005

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 TOK04006	今後の手続きについては、様式 PCT/IPEA/416 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 2004/008959	国際出願日 (日.月.年) 18.06.2004	優先日 (日.月.年) 20.06.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. ⁷ C07D303/27, C07C41/16, 43/188, C07D305/06, H01L33/00		
出願人 (氏名又は名称) 株 式 会 社 ト ク ヤ マ		

<p>1. この報告書は、PCT35 条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第 57 条 (PCT36 条) の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 5 ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で 9 ページである。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT 規則 70.16 及び実施細則第 607 号参照)</p> <p><input type="checkbox"/> 第 I 欄 4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙</p> <p>b. <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第 802 号参照)</p> <p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 I 欄 国際予備審査報告の基礎</p> <p><input type="checkbox"/> 第 II 欄 優先権</p> <p><input type="checkbox"/> 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成</p> <p><input type="checkbox"/> 第 IV 欄 発明の単一性の欠如</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 V 欄 PCT35 条 (2) に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VI 欄 ある種の引用文献</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 VII 欄 国際出願の不備</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VIII 欄 国際出願に対する意見</p>	
--	--

国際予備審査の請求書を受理した日 09.03.2005	国際予備審査報告を作成した日 22.09.2005	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号	特許庁審査官 (権限のある職員) 荒 木 英 則	4 C 9736
	電話番号 03-3581-1101 内線	3452

様式 PCT/IPEA/409 (表紙) (2004 年 1 月)

第I欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、_____ 語による翻訳文を基礎とした。
それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査
☐ PCT規則12.4にいう国際公開
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 2-17, 19-72 ページ、出願時に提出されたもの

第 1, 18

ページ*, 18.04.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 ページ*, 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 9

項、出願時に提出されたもの

第 2-6, 8, 10-11

項*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第

項*, 18.04.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 項*, 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 図面

第 _____ ページ/図、出願時に提出されたもの

第 _____ ページ/図*

付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ/図*

付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書

第 _____

ページ

☒ 請求の範囲

第 _____

1, 7

項

☐ 図面

第 _____

ページ/図

☐ 配列表 (具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書

第 _____

ページ

☐ 請求の範囲

第 _____

項

☐ 図面

第 _____

ページ/図

☐ 配列表 (具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	2-6, 8-11	有
	請求の範囲		無
進歩性 (IS)	請求の範囲	2-6, 8-11	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	2-6, 8-11	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

見解は、国際調査報告で引用された以下の各文献の記載に基づいて示される。

文献1: TWARDOWSKI, T.E., *et al.*, J.M.S. - Pure Appl. Chem., 1993, A30(1), pp. 75-89

文献2: SMYTH, H.F., *et al.*, American Industrial Hygiene Association Journal, 1969, 30(5), pp. 470-476.

文献3: US 3297724 A (McMONNELL, R.L.)

文献4: US 3404102 A (STARCHER, P.S.)

文献5: JP 2000-302774 A (宇部興産株式会社)

文献6: JP 2001-81286 A (住友ベークライト株式会社)

文献7: GB 982151 B (CIBA LIMITED)

文献8: CH 456949 A5 (CIBA Aktiengesellschaft)

文献9: JP 60-124608 A (日本合成ゴム株式会社)

○請求の範囲 2-6, 8-11 について

文献1 (特に図2及び図3) には、多様な用途に利用されるエポキシレジンに関し、2,7-ジヒドロキシナフタレンをジグリシジル化したものが硬化性を示すこと、及び、かかる硬化性化合物の重合の態様が、文献2には、2,5-ビス (アリルオキシ) ノルボルネンが、文献3及び4 (特に実施例) では、ポリマーレジン形成するためのジエポキシド構造を有する化合物、及び、該化合物の製造方法としてヒドロキシ化合物をアルコラート化し、次いでこれにアリル基を置換させてアリル基を酸化させることが、そして文献5から8 (特に実施例) には、オキセタン構造又はエポキシ構造を有する化合物が重合反応により硬化し樹脂化すること、及び、該樹脂を半導体部品の接着やコーティングに用いることが、それぞれ記載されている。

ここで、請求の範囲2から6および8から11に係る発明と文献1から8に記載のものとを比較すると、多環式炭化水素化合物から誘導される2~6価の基がアダマンタン基である点、および、その製造工程でアルカリ金属またはアルカリ金属水素化物を用いている点で、文献1から8のものに相違する。

(続葉に続く。)

第Ⅶ欄 国際出願の不備

この国際出願の形式又は内容について、次の不備を発見した。

○請求の範囲 11 について

18.04.2005 付で提出された手続補正書では、請求の範囲 11 に関しても式番号や構造式が補正されているが、請求の範囲の表示として「11. (補正後)」のように記載されていない。

(法施行規則 31 条および様式 15、PCT 規則 66.8(a)、PCT 実施細則 205 号)

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 V 欄の続き

一方、文献9には、光学材料や電気部品の封止剤に用いる重合体においてアダマンタン誘導体を用いて重合させること、及び、当該アダマンタン誘導体の製造方法が記載されているが、これは当業者に良く知られた事項である。

しかしながら、18.04.2005付で出願人により提出された答弁書及び該答弁書に添付された実験証明書では、文献1から8に記載の製造方法によっては本願の書く請求の範囲に係る発明である化合物や製造方法を実施することができないことが具体的な実験結果により示されており、また、文献9に記載の方法は本願の製造方法とはその工程が大きく異なるものである。してみれば、これらの文献の記載によっては、当業者といえども容易に本願の請求の範囲2から6および8から11に係る発明に想到し得たものとは認められない。

したがって、請求の範囲2から6および8から11に係る発明は、文献1から9の記載によっても新規性及び進歩性を有するものである。

明細書

硬化性多環式化合物、及びその製造方法

5

技術分野

本発明は、封止剤や接着剤等の原料として有用な新規硬化性多環式化合物、その製造法、同化合物を用いて製造する硬化性組成物、同硬化性組成物を用いる発光ダイオード用封止剤、同封止剤で封止された発光ダイオードに関する。前記硬化性多環式化合物は、硬化反応を生じる官能基としてオキセタニル基もしくはエポキシ基を有する。

10

背景技術

多環式炭化水素化合物は非芳香族性を示し、かつ分子が剛直で、特異な構造を有するため、様々の分野で注目されている。例えば、光学特性、耐熱性に優れたプラスチックレンズ用モノマーとしてアダマンタンジカルボン酸ジアリル（特開昭60-100537号公報）やアダマンタンジ（メタ）アクリレート誘導体（特開昭63-307844号公報）が知られている。

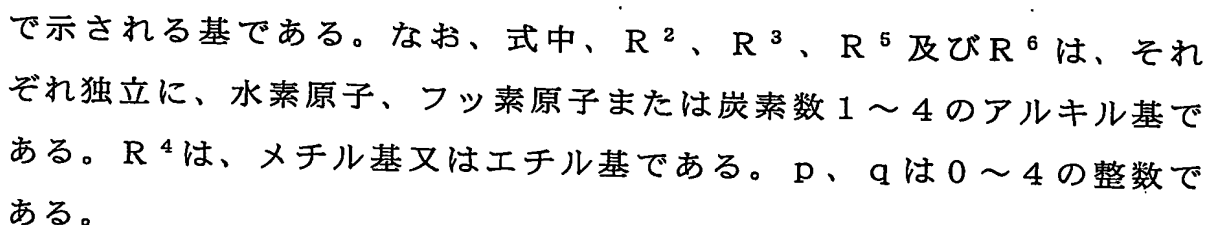
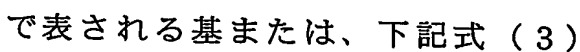
15

また、密着性、耐光性、耐薬品性、硬度に優れたコーティング組成物用モノマー或いは塗料用モノマーとして、（メタ）アクリル基を有する特定のアダマンタン化合物が知られている（特開2000-327950号公報、特開2000-327994号公報）。

20

一方、近年における化合物半導体を用いて製造した半導体発光素子である発光ダイオード（以下、LEDと称す）の進展はめざましい。発光材料としては、赤色～橙色のアルミニウム・インジウム・ガリウム・リン（AlInGaP）、青色のガリウムナイトライト（GaN）が開発

25



前記式（４）で示される硬化性アダマンタン化合物の中でも p 及び q が全て 0 である硬化性アダマンタン化合物が物性の良好さ等の点で好適である。好適な化合物を具体的に例示すれば、1, 3-ビス [(3-エチルオキシタン-3-イル) メトキシ] アダマンタン、5, 7-ジメチル-1, 3-ビス [(3-エチルオキシタン-3-イル) メトキシ] アダマンタン、1, 3, 5-トリス [(3-エチルオキシタン-3-イル) メトキシ] アダマンタン等のオキシエタニル基を有するアダマンタン化合物、1, 3-ビス (グリシジルオキシ) アダマンタン、5, 7-ジメチル-1, 3-ビス (グリシジルオキシ) アダマンタン、1, 3, 5-トリス (グリシジルオキシ) アダマンタン等のエポキシ基を有するアダマンタン化合物を挙げることができる。

これらのなかでも、得られる硬化体の耐熱性が高く、かつ製造が容易であることから、特に 1, 3-ビス [(3-エチルオキシタン-3-イル) メトキシ] アダマンタン、1, 3, 5-トリス [(3-エチルオキシタン-3-イル) メトキシ] アダマンタン等のオキシエタニル基を有するアダマンタン化合物、1, 3-ビス (グリシジルオキシ) アダマンタ

請求の範囲

1. (削除)

5

10

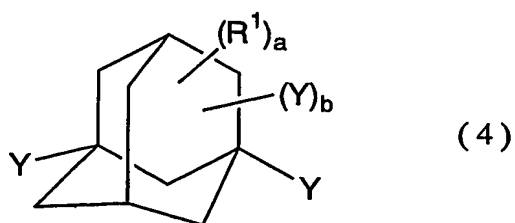
15

20

25

2. (補正後) 下記式 (4)

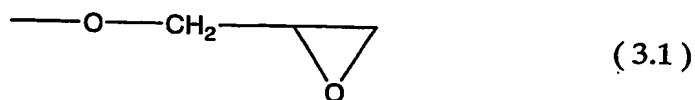
5



{式中、 R^1 は炭素数 1～4 のアルキル基、炭素数 1～4 のパーフルオ
ロアルキル基、またはフッ素原子であり、 a は 0～2 の整数であり、 b

10 は 0～2 の整数であり、

Y は下記式 (3.1)



で示される基である。}

15 で表される硬化性多環式化合物。

4. (補正後) 不純物として含まれるハロゲン分子またはハロゲンイオンの含有量が100～2000ppmである請求の範囲第2項に記載の硬化性多環式化合物。

$$\begin{array}{c} \text{O} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{CH}_2 - \text{O} - \left[\begin{array}{c} \text{C} \text{---} \text{C} \text{---} \text{C} \\ \diagup \quad \diagdown \quad \diagup \quad \diagdown \quad \diagup \quad \diagdown \\ \text{C} \text{---} \text{C} \text{---} \text{C} \end{array} \right] \text{O} - \text{CH}_2 - \text{C} \begin{array}{c} \text{H} \\ | \\ \text{OH} \end{array} - \text{CH}_2 - \text{O} - \left[\begin{array}{c} \text{C} \text{---} \text{C} \text{---} \text{C} \\ \diagup \quad \diagdown \quad \diagup \quad \diagdown \quad \diagup \quad \diagdown \\ \text{C} \text{---} \text{C} \text{---} \text{C} \end{array} \right] \text{O} - \text{CH}_2 - \text{O} \\ \text{O} \end{array} \quad (7.1)$$

で示される硬化性多環式化合物。

6. (補正後) 請求の範囲第2項乃至第5項の何れか1項に記載の硬化性多環式化合物及び硬化剤を含有してなることを特徴とする硬化性組成物。

7. (削除)

5

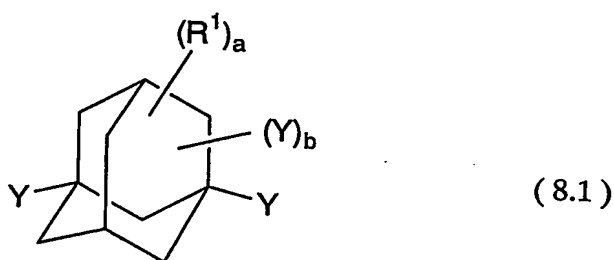
10

8. (補正後) 請求の範囲第6項に記載の硬化性組成物からなる発光ダイオード用封止剤。

9. 請求の範囲第8項に記載の封止剤で封止された発光ダイオード。

10. (補正後) 下記工程(a)～(c)を含むことを特徴とする下

15 記式(8.1)



{式中、 R^1 は炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のパーフルオロアルキル基、またはフッ素原子であり、 a は0～2の整数であり、 b は0～2の整数であり、

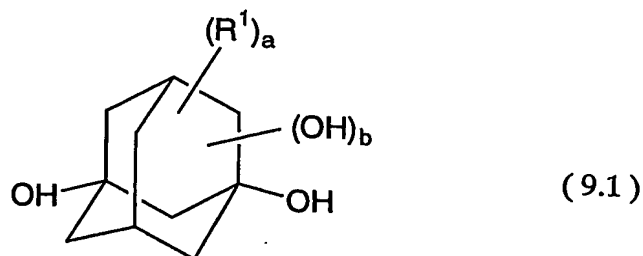
20 Yは下記式(3.1)



で示される基である。}

で示され多環式エポキシ化合物の製造方法。

(a) 下記式 (9. 1)

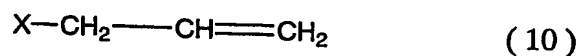


{式中、 R^1 、 a 及び b は、それぞれ前記式 (8. 1) におけるものと同義である。}

で表される多環式ヒドロキシ化合物と、アルカリ金属又はアルカリ金属

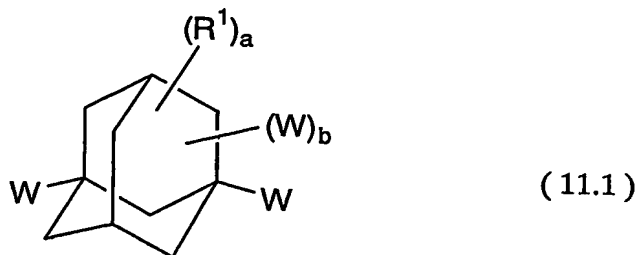
10 水素化物とを反応させてアルコールを得る工程、

(b) 前記工程 (a) で得られたアルコールと下記式 (10)

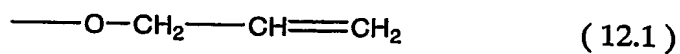


15 {式中、 X はハロゲン原子又はスルホニルオキシ基である。}

で示されるアリル基含有化合物とを反応させて下記式 (11. 1)



{式中、 R^1 、 a 及び b は、それぞれ前記式 (8. 1) におけるものと同義であり、 W は下記式 (12. 1)

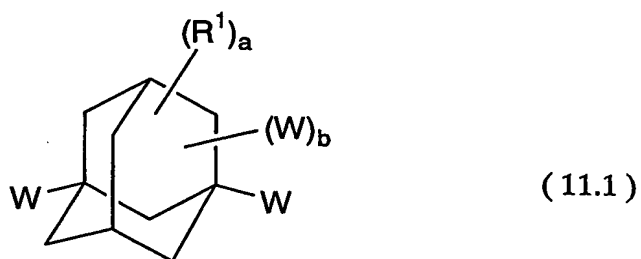


で示される基である。]

5 で表される多環式アリル化合物を得る工程、及び

(c) 前記工程 (b) で得られた多環式アリル化合物を酸化する工程。

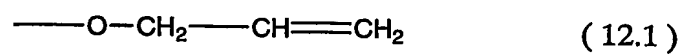
11. (補正後) 下記式 (11.1)



10

{式中、 R^1 は炭素数 1～4 のアルキル基、炭素数 1～4 のパーフルオロアルキル基、またはフッ素原子であり、 a は 0～2 の整数であり、 b は 0～2

の整数であり、Wは下記式 (12. 1)



5 で示される基である。}

で表される多環式アリル化合物。